(19)日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号 特開2001-23778 (P2001-23778A)

(43)公開日 平成13年1月26日(2001.1.26)

| (51) Int.Cl.7 | 識別記号 | F I | テーマコード(参考) |
|---------------|-----------------------------|-------------------|----------------------|
| H05B 33/14 | | H 0 5 B 33/14 | В |
| C 0 8 G 73/00 | | C08G 73/00 | |
| 73/10 | | 73/10 | |
| C08K 5/42 | | C 0 8 K 5/42 | |
| C08L 79/00 | | C08L 79/00 | A |
| | 審査請求 | : 有 請求項の数11 OL | (全 17 頁) 最終頁に続く |
| (21)出願番号 | 特願2000-152850(P2000-152850) | (71)出願人 500002434 | |
| (62)分割の表示 | 特願平10-223386の分割 | ネース・カン | パニー・リミテッド |
| (22)出顧日 | 平成10年8月6日(1998.8.6) | Ness C | o., Ltd. |
| | | 大韓民国、キ | ュンキード 442-380、スウ |
| (31)優先権主張番号 | 1997-45959 | オンーシ、パ | ルダルーグ、ウォンションー |
| (32)優先日 | 平成9年9月5日(1997.9.5) | ドン、ナンパ | |
| (33)優先権主張国 | 韓国 (KR) | (72)発明者 金 澪圭 | |

(31)優先権主張番号 1997-52095

大韓民国、釜山広域市617-012沙上区周礼 平成9年10月10日(1997.10.10)

2洞10-21番地パンドポラメマドタウン

102棟902号

(31)優先権主張番号 1997-52096 (74)代理人 100058479

弁理士 鈴江 武彦 (外4名)

(33)優先権主張国 韓国 (KR)

(33)優先権主張国 韓国(KR)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 ポリイミドを含む有機薄膜層を有する電気発光素子

平成9年10月10日(1997.10.10)

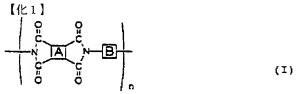
(57)【要約】

(32)優先日

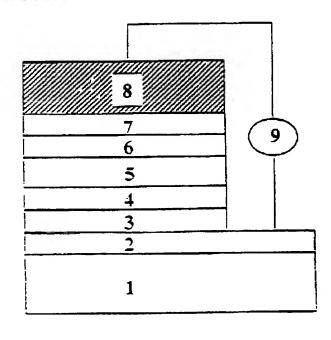
(32)優先日

【課題】 耐熱性および機械的物性に優れており、安定 性が改善され、長い寿命を有する電気発光素子を提供す ること。

【解決手段】 透明電極層、金属電極層、およびこの二 つの電極層の間に密着して位置する有機中間層を含む電 気発光素子において、前記有機中間層が有機発光層、選 択的な正孔輸送層および選択的な電子輸送層からなり、 下記一般式(I)のポリイミドを含むことを特徴とする 電気発光素子。



前記式で、Aは二無水物から誘導された残基、Bはジア ミン化合物から誘導された残基、nは2以上の整数であ る。



20

【特許請求の範囲】

【請求項 1.】透明電極層、金属電極層、および前記二つ の電極層の間に密着して位置する有機中間層を含む電気 発光素子において、前記有機中間層が、ドデシルベンゼ ンスルホン酸、ショウノウスルホン酸、ベンゼンスルホ ン酸、p-トルエンスルホン酸および5-スルホサリチ ル酸からなる群から選ばれた酸でドーピングされたポリ アニリンが下記一般式(I)のポリイミドに分散されて いる正孔輸送層および有機発光層を含むことを特徴とす る電気発光素子。

【化1】

$$\begin{array}{c|c}
O & O \\
C & C \\
N & C \\
O & O
\end{array}$$

前記式で、Aは二無水物から誘導された残基、Bはジア ミン化合物から誘導された残基、nは2以上の整数であ

【請求項2】前記酸でドーピングされたポリアニリン が、正孔輸送層の総重量を基準として5ないし80%範 囲であることを特徴とする請求項1に記載の電気発光素

【請求項3】前記有機中間層と電極の間に位置したポリ イミド緩衝層をさらに含むことを特徴とする請求項1に 記載の電気発光素子。

【請求項4】前記ポリイミドが、下記一般式(III)の ポリ (アミク酸)、一般式 (VI) のポリアミク酸ジアル キルエステル、一般式 (VII) の共有結合型感光性ポリ イミド前駆体、一般式 (VIII) のイオン結合型ポリイミ ド前駆体およびこれらの混合物からなる群から選ばれた ポリイミド前駆体を加熱イミド化または赤外線照射して 形成されることを特徴とする請求項1に記載の電気発光 素子:

【化2】

(III)

$$\begin{array}{c|c}
H & O & O \\
\hline
N-C & B & C-OR \\
\hline
RO-C & C-N-B \\
O & O & H
\end{array}$$
(VI)

$$\begin{array}{c|c}
 & H & O & O \\
 & N - C & C - CR^* \\
\hline
 & R^*O - C & C - N - B \\
 & O & O & H
\end{array}$$
(VII)

$$\begin{array}{c|c}
 & H & O & O \\
 & N - C & A & C - O R^+ \\
\hline
 & R^+O - C & C - N - B \\
 & O & H & n
\end{array}$$
(VIII)

前記式で、A、Bおよびnは前記請求項1で定義した通 りであり、Rはアルキル基、R* は共有結合型感光性官 能基、R^{*} はイオン結合型感光性官能基である。

【請求項5】前記二無水物化合物が、ピロメリト酸二無 水物、3,4,3',4'ービフェニルテトラカルボン酸 二無水物、3,3',4,4'ーベンゾフェノンテトラカ ルボン酸二無水物、4,4'-(ヘキサフルオロプロピリ デン) ジ無水フタル酸、4,4'-(ジメチルシリコン) ージ無水フタル酸、4,4'ーオキシージ無水フタル 酸、3,3',4,4'ージフェニルスルホンテトラカル ボン酸二無水物、1,2,3,4-シクロペンタンテトラ 40 カルボン酸二無水物、ナフタレン-1,4,5,8-テト ラカルボン酸二無水物、3,4,9,10-ペリレンテト ラカルボン酸二無水物、4-(2,5-ジオキソテトラヒ ドロフラン-3-イル) テトラリン-1,2-ジカルボ ン酸無水物、5-(2,5-ジオキソテトラヒドロフリ ル)-3-メチル-3-シクロヘキセン-1,2-ジカル ボン酸無水物、ビシクロ[2,2,2]オクター7ーエン -2,3,5,6-テトラカルボン酸二無水物、2,2'-ジー t ーブチルビフェニルービス (無水フタル酸エーテ ル)、2,5'ージーtーブチルフェニルービス(無水フ 50 タル酸エーテル)、およびビスフェノールAービス(無

水フタル酸エーテル)からなる群から選ばれ、前記ジア ミン化合物が、4,4'ージアミノジフェニルエーテ ル、4,4'ージアミノジフェニルメタン、2,2ービス (4-アミノフェニル) プロパン、3,5-ジアミノト ルエン、3,4ージアミノジフェニルエーテル、3,4 ージアミノジフェニルメタン、4,4'ーフェニレンジ アミン、3,4ーフェニレンジアミン、3,3ージアミノ ジフェニルエーテル、3,3'ージアミノジフェニルメ タン、2,5-ジメチルーpーフェニレンジアミン、2, 3,5,6ーテトラメチルーpーフェニレンジアミン、ジ 10 アミノフルオレン、ジアミノフルオレノン、4,4'-ジアミノベンゾフェノン、4,4'ージアミノビフェニ ル、3,3'ージアミノベンゾフェノン、4,4'ージア ミノスルフィド、 α , α ' ービス(4ーアミノフェニル) -1.4ージイソプロピルベンゼン、2,2ービス[4-(4-アミノフェノキシ)フェニル]プロパン、1,4-ビス (4-アミノフェノキシ) ベンゼン、2,2-ビス [4-(3-アミノフェノキシ) フェニル] ヘキサフルオ ロプロパン、2,6-ジアミノトルエン、メシチレンジ アミン、4,4'ージアミノジフェニルスルホン、3, 3'ージアミノジフェニルスルホン、3,3'ービス (アミノフェニル) ヘキサフルオロプロパン、2,2-ビス (3-アミノー4-ヒドロキシフェニル) ヘキサフ ルオロプロパン、4.4'ービス(2-クロロアニリ ノ) メタン、4,4-ビス(アミノシクロヘキシル)メ タン、2,2'ービス(3-アミノー4-メチルフェニ ル) ヘキサフルオロプロパン、3,4'ージアミノベン ゾフェノン、4,4'ージアミノビベンジル、4,4'ー ビス (アミノフェニル) ヘキサフルオロプロパン、1, 3'-ビス (m-アミノフェノキシ) ベンゼン、4, 4'-メチレンービス-o-トルイジン、3,3'-ジ アミノー4,4'ージヒドロキシビフェニル、4,4'ー ジアミノオクタフルオロジフェニル、4,4'ービス (アミノフェニル) セレン化物、9,10ービス(3ー アミノフェニルチオ)アントラセン、9,10ービス (4-アミノフェニルチオ) アントラセン、9,10-ビス (3-アミノアニリノ) アントラセン、9,10-ビス (4-アミノアニリノ) アントラセン、アクリジン イエローG、アクリフラビン、3,6-ジアミノアクリ ジン、6,9-ジアミノ-2-エトキシアクリジン、塩 基性フクシン、メチル化塩基性フクシン、 2, 4 ージア ミノー6-フェニルー1,3,5-トリアジン、9,10 ージアミノフェナントレン、3,8ージアミノー6ーフ ェニルフェナントリジン、臭化ジミジウム、臭化エチジ ウム、ヨウ化プロピジウム、チオニン、3,7ージアミ ノー5ーフェニルフェナジウムクロリドおよび3,3'

ージメチルナフチジンからなる群から選ばれることを特 徴とする請求項1に記載の電気発光素子。

【請求項6】前記有機発光層が、トリス(8-ヒドロキ シキノリノラト)アルミニウム、1,1,4,4ーテトラ フェニルー1,3ーブタジエン、オリゴフェニレンビニ レン誘導体、4-(ジシアノメチレン)-2-メチルー6 -(4-ジメチルアミノスチリル)-4H-ピラン、1, 4-ジスチリルベンゼン、アントラセン、テトラセン、 ペントラセン、コロネン、ペリレン、ピレン、ビス(8 ーキノリノラト) 亜鉛(II)、9,10-ジフェニルア ントラセン、トリス(4,4,4-トリフルオロー1-(2-チェニル)-1,3-ブタンジオノ)-1,10-フェナントロリンユウロピウム (III) 、トリス (2,4-ペンタジオノ)-1,10-フェナントロリンテルビウム (III) 、トリス (4,4,4-トリフルオロー1-(2-チエニル)-1,3-ブタンジオノ)-1,10-フェナン トロリンジスプロシウム (III) およびこれらの混合物 からなる群から選ばれた有機発光物質を含有することを 特徴とする請求項1に記載の電気発光素子。

【請求項7】前記有機発光物質が、有機発光層の総重量 を基準として5ないし70%範囲であることを特徴とす る請求項6に記載の電気発光素子。

【請求項8】前記有機中間層が、オキサジアゾール誘導 体、イミド誘導体およびこれらの混合物からなる群から 選ばれた電子輸送物質を含有することを特徴とする請求 項1に記載の電気発光素子。

【請求項9】前記有機中間層が、有機発光層と、2:9 8ないし95:5重量比範囲の酸でドーピングされたポ リアニリンおよびポリイミド前駆体の混合物をコーティ 30 ングし、コーティング層を加熱イミド化して製造される 正孔輸送層とからなることを特徴とする請求項1に記載 の雷気発光素子。

【請求項10】前記有機発光層が、2:98ないし9 5:5重量比範囲の有機発光物質およびポリイミド前駆 体の混合物をコーティングし、コーティング層を加熱イ ミド化して製造されることを特徴とする請求項1に記載 の電気発光素子。

【請求項11】前記有機中間層が、2:98ないし9 5:5重量比範囲のドーピングされたポリアニリンおよ 40 びポリイミド前駆体の混合物をコーティングし、コーテ ィング層を加熱イミド化して製造された正孔輸送層と、 有機発光物質および下記一般式 (II) のポリエーテルイ ミドを5:95ないし70:30範囲の重量比で含有す る有機発光層とからなることを特徴とする請求項1に記 載の方法。

【化3】

【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】本発明は、有機電気発光素子に関する。さらに詳細には、有機層が発光および/また 10 は担体輸送能力のあるポリイミド層を有し、改善された発光効率、優れた安定性および長い寿命を有する有機電気発光素子に関する。

[0002]

【従来の技術】一般に、電気発光素子は、透明電極、金属電極、および前記二つの電極の間に位置する有機発光層を含む有機層からなる積層構造を有し交流または直流で駆動される。直流駆動の場合は、透明電極が陽極、金属電極が陰極に作用する。電気発光効率を高めるために、有機層は正孔輸送層および電子輸送層を多層構造の形でさらに含み得る。

【0003】たとえば、直流駆動の場合、別途の正孔輸送層が陽極と有機発光層の間に密着されて位置し得る。また、選択的な電子輸送層を陰極層と有機発光層の間に挿入し得る。したがって、用いられる有機物質によって電気発光素子の有機層は単層、2層または3層であり得、各々の層は種々の組合せの有機発光物質、正孔輸送物質および電子伝達物質を含有する。陽極としては、インジウム・スズ酸化物ガラス板が主に用いられ、陰極としてはマグネシウム、アルミニウム、インジウムまたは30銀ーマグネシウムの金属層が用いられる。

【0004】しかし、単分子を通常の真空蒸着法に従っ て製造した有機層、たとえば正孔伝達層は、素子を駆動 する際に発生するジュール熱のため振動、結晶化および 拡散移動が生じることによって、薄膜が変形または破壊 されて素子の寿命が短くなる問題があった。このような 問題を解決するために最近には、ガラス転移温度が10 5℃であるポリメチルメタクリレート(PMMA)、ガ ラス転移温度が145℃であるポリカーボネート (P C) またはガラス転移温度が150℃以下の他のビニル 40 系高分子のマトリックスに活性物質、たとえば、正孔伝 達物質および有機発光物質を分散させて有機層を製造し た。しかし、これらの高分子は耐熱性が低いため製造さ れた有機層の安定性は満足できるものではない (Kid o et al., Appl. Phys. Let t., 61, No. 7, 171, 1992;およ び Jpn, J. Appl. Phys., 31, N o. 78, L960, 1992参照)。

【0005】一方、米国特許第5,609,970号、第5,571,626号、第5,414,069号およ 50

び第5,376,456号は新しい電気発光高分子を開示している。しかし、このような特別な高分子の合成には多くの費用を要し、合成課程が複雑であるため電気発光素子の大量生産には適合しない。

【0006】ポリイミド系化合物は電気および電子分野において広く用いられてきた。たとえば、電気発光素子のパッケージイング、または、絶縁材として用いることが報告されている(米国特許第5,505,985号および第5,416,622号参照)。また、日本国特開平4-93389号には、ポリイミドを正孔輸送層として用いることが報告されており、特開平7-230881号には、500ないし1,000℃の温度で熱処理して製造したシリコンを含有するポリイミドが正孔輸送能力を有すると開示されている。しかし、最終素子の駆動電圧は依然として高い。

【0007】したがって、安定性および電気発光効率が 改善され、経済性のよい電気発光素子の開発が要求され る。

[0008]

【発明が解決しようとする課題】したがって、本発明の 目的は、耐熱性および機械的物性に優れており、安定性 が改善され、長い寿命を有する電気発光素子を提供する ことである。

[0009]

【課題を解決するための手段】本発明の一実施態様によって、透明電極層、金属電極層、および前記二つの電極層の間に密着して位置する有機中間層を含む電気発光素子において、前記有機中間層が有機発光層、選択的な正孔輸送層および選択的な電子輸送層からなり、下記一般式(I)のポリイミドを含むことを特徴とする電気発光素子が提供される。

$$\begin{array}{c|c}
(\text{L}4) \\
\hline
\begin{array}{c}
0 \\
0 \\
0
\end{array}$$

【0011】前記式で、Aは二無水物から誘導された残基、Bはジアミン化合物から誘導された残基、nは2以上の整数である。

【0012】また、本発明の他の実施態様によって、透明陽極層、金属陰極層、有機発光物質を含有する有機発

8

光層、正孔輸送層を含み、前記有機発光層は陰極層と正 孔輸送層の一面の間に密着して位置し、前記正孔輸送層 の他面は陽極と密着している電気発光素子において、前 記正孔輸送層がポリイミドマトリックスに分散された正 孔輸送物質を含有する電気発光素子が提供される。

【0013】本発明のまた他の実施態様によって、透明 陽極層、金属陰極層、有機発光物質を含有する有機発光 層を含み、前記有機発光層は陰極層と陽極層の間に密着 して位置する電気発光素子において、前記有機発光層が ポリイミドマトリックスに分散された有機発光物質を含 有する電気発光素子が提供される。

[0014]

【発明の実施の形態】以下、本発明をさらに詳細に説明 する、

【0015】本発明の一態様による電気発光素子は、ガラスのような透明基板上にコーティングされたインジウムスズ酸化物(indium tinoxide;以下、ITOという)層を予め決定されたパターンに従って通常の方法でエッチングして製造した陽極と、アルミニウム、マグネシウム、カルシウム、銀またはその他金属または合金で製造した金属電極層と、前記透明電極層および金属電極層の間に密着して位置する有機発光層を含む有機中間層とからなる。本発明の電気発光素子は交流または直流をもって作動され得る。直流作動の場合、透明電極は陽極となり、金属電極は陰極として作用する。

*【0016】前記有機中間層は透明電極層および有機発 光層の間に挟まれた正孔輸送層をさらに含み得る。ま た、有機中間層は金属電極層および有機発光層の間に挿 入された電子輸送層をさらに含み得る。

【0017】したがって、有機中間層は、有機発光物質、正孔輸送物質および電子輸送物質をどのような組合せで用いるかによって単層または多層構造の形態で製造し得る。たとえば、有機中間層は、正孔輸送/有機発光層および電子輸送層、または正孔輸送層および有機発光/電子輸送層からなる二層形態であり得る。また、有機中間層は正孔輸送層、有機発光層および電子輸送層からなる三層形態でもあり得る。

【0018】本発明の特徴は有機中間層にポリイミドを 用いることである。

【0019】一般式(I)のポリイミドは、AおよびBの残基のいずれかが正孔輸送、発光または電子輸送能力のある官能基を含む場合、正孔輸送、発光または電子輸送能力を示す。

て通常の方法でエッチングして製造した陽極と、アルミニウム、マグネシウム、カルシウム、銀またはその他金 20 は、ポリイミド前駆体を熱処理して誘導した不溶性ポリスには合金で製造した金属電極層と、前記透明電極層 イミドおよびガラス転移温度が220℃以上であり、分および金属電極層の間に密着して位置する有機発光層を 子量が40,000以上である下記一般式(II)のポリ合む有機中間層とからなる。本発明の電気発光素子は交 エーテルイミドのような可溶性ポリイミドである。

[0021]

【化5】

前記式で、nは2以上の整数である。

【0022】本発明に使用され得るポリイミド前駆体は、N-メチル-2-ピロリドン、ジメチルアセトアミド、テトラヒドロフラン、ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド (DMSO) などの溶媒中で一般式 (IV) の二無水物と一般式 (V) のジアミンの混合物を <math>0ないし60 $^{\circ}$ 0の温度で24ないし48時間処理して得られた一般式 (III) のポリアミク酸 (p0lyamicacid)である:

[0023]

【化6】

$$NH_2 - B - NH_2 \qquad (V)$$

【0024】また、一般式 (VI) のポリアミク酸ジアルキルエステル、一般式 (VII) の共有結合型感光性ポリイミド前駆体、一般式 (VIII) のイオン結合型感光性ポ50 リイミド前駆体も用い得る。ポリイミド前駆体は、10

0ないし600℃範囲の温度で熱イミド化するか、紫外線を照射することによって一般式(I)に相応するポリイミドに転換し得る。

[0025]

【0026】前記式で、A、Bおよびnは前記定義した 通りであり、Rはアルキル基、R*は・CH2CH2O C(=O) CH=CH2のような共有結合型感光性官能* * 基、R+は+NH(CH3)2CH2CH2OC(=O)CH=CH-Ph-N3のようなイオン結合型感光性官能基であり、nは30ないし150である。

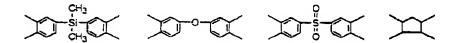
【0027】前記式で、A残基を誘導するに用いられる 一般式(IV)の二無水物には、ピロメリト酸二無水物、 3,4,3',4'ービフェニルテトラカルボン酸二無水 物、3,31,4,41ーベンゾフェノンテトラカルボン 酸二無水物、4,4′ー(ヘキサフルオロプロピリデン) ジ無水フタル酸、4,4'-(ジメチルシリコン)ジ無水 10 フタル酸、4,4'-オキシジ無水フタル酸、3,3', 4,4'ージフェニルスルホンテトラカルボン酸二無水 物、1,2,3,4-シクロペンタンテトラカルボン酸二 無水物、ナフタレン-1,4,5,8-テトラカルボン酸 二無水物、3,4,9,10-ペリレンテトラカルボン酸 二無水物、4-(2,5-ジオキソテトラヒドロフランー 3-イル) テトラリンー1,2-ジカルボン酸無水物、 5-(2,5-ジオキソテトラヒドロフリル)-3-メチ ルー3-シクロヘキセン-1,2-ジカルボン酸無水 物、ビシクロ [2,2,2] オクター7ーエンー2,3, 20 5,6-テトラカルボン酸二無水物、2,2'ージーtー ブチルビフェニルービス (無水フタル酸エーテル)、 2,5'-ジーt-ブチルフェニルービス(無水フタル酸 エーテル)、およびビスフェノールA-ビス (無水フタ

ル酸エーテル)などが含まれる。前記二無水物から誘導された一般式(I)のポリイミドのAの構造は次の通り

[0028]

【化8】

である。



[0029]

【化9】

【0030】残基Bを形成する一般式(V)のジアミン の例としては、4,4'ージアミノジフェニルエーテ ル、4,4'ージアミノジフェニルメタン、2,2ービス (4-アミノフェニル) プロパン、3,5-ジアミノト ルエン、3,4-ジアミノジフェニルエーテル、3,4' ージアミノジフェニルメタン、4,4'ーフェニレンジ アミン、3,4-フェニレンジアミン、3,3-ジアミノ ジフェニルエーテル、3,3'ージアミノジフェニルメ タン、2,5 - ジメチル- p - フェニレンジアミン、<math>2アミノフルオレン、ジアミノフルオレノン、4,4'-ジアミノベンゾフェノン、4,4'ージアミノビフェニ ル、3,3'ージアミノベンゾフェノン、4,4'ージア ミノスルフィド、 α , α ' ービス (4ーアミノフェニル) -1.4-ジイソプロピルベンゼン、2.2-ビス「4-(4-アミノフェノキシ) フェニル] プロパン、1.4-ビス (4-アミノフェノキシ) ベンゼン、2,2-ビス [4-(3-アミノフェノキシ) フェニル] ヘキサフルオ ロプロパン、2,6-ジアミノトルエン、メシチレンジ アミン、4,4'ージアミノジフェニルスルホン、3,3'ージアミノジフェニルスルホン、3,3'ービス (アミノフェニル) ヘキサフルオロプロパン、2,2-ビス (3-アミノー4-ヒドロキシフェニル) ヘキサフ ルオロプロパン、4,4'ービス(2-クロロアニリ ノ) メタン、4,4ービス (アミノシクロヘキシル) メ タン、2,2'ービス(3-アミノー4-メチルフェニ

ル) ヘキサフルオロプロパン、3,4' -ジアミノベン ゾフェノン、4,4'ージアミノビベンジル、4,4'ー ビス (アミノフェニル) ヘキサフルオロプロパン、1, 3'ービス (mーアミノフェノキシ) ベンゼン、4, 4'ーメチレンービスーoートルイジン、3,3'ージ アミノー4.4'ージヒドロキシビフェニル、4.4'ー ジアミノオクタフルオロジフェニル、4,4'ービス (アミノフェニル) セレン化物、9,10-ビス (3-20 アミノフェニルチオ) アントラセン、9,10-ビス (4-アミノフェニルチオ) アントラセン、9,10-ビス (3-アミノアニリノ) アントラセン、9,10-ビス (4-アミノアニリノ) アントラセン、アクリジン イエローG、アクリフラビン、3,6-ジアミノアクリ ジン、6,9-ジアミノ-2-エトキシアクリジン、塩 基性フクシン、メチル化塩基性フクシン、2,4-ジア 3 - 6 - 7 = 2 - 1, 3, 5 - 7 = 2 - 2, 10ージアミノフェナントレン、3,8ージアミノー6ーフ ェニルフェナントリジン、臭化ジミジウム、臭化エチジ 30 ウム、ヨウ化プロピジウム、チオニン、3,7ージアミ ノー5ーフェニルフェナジウムクロリドおよび3.3° - ジメチルナフチジンなどがある。前記ジアミンから誘 導された一般式(I)のポリイミドのBの構造は次の通 りである。

[0031] 【化10】

【化11】

[0032]

[0033]

$$- \sum_{i}^{17} \frac{7}{N} - \sum_{i}$$

【0034】正孔輸送層

本発明の正孔輸送層は、正孔伝達能力のある残基を有する一般式(I)のポリイミド、またはポリイミドと窒素含有物質のような通常の正孔輸送物質との混合物を含む。具体的な輸送物質の例としては、N, N'ージフェニルーN, N'ービス(3ーメチルフェニル)ー1, 1'ージフェニルー4, 4'ージアミン(TPD)およびポリ(Nービニルカルバソール)があり、このうちTPDが好ましい。

【0035】正孔輸送物質が一般式(II)のポリエーテルイミド(polyetherimide:以下、PE 40 Iという)に分散される場合、ポリエーテルイミド:正孔輸送物質の重量比は90:10ないし10:90、好ましくは50:50である。重量比が90:10未満であれば正孔輸送能力が低くなり、90:10を超過すると正孔輸送層の表面均一性が低下する。PEIと正孔輸送物質の適切な混合物を0.3ないし10重量%の濃度で溶媒に分散させてコーティング溶液を製造する。この際、溶媒はクロロホルム、ジクロロメタン、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド、Nーメチルー2ーピロリドン(NMP)、テトラヒドロフランおよびこれ 50

30 らの混合物中から選ぶことができる。

【0036】製造したPEI/正孔輸送物質のコーティング溶液をスピンコーティング、ドックターブレーディングおよびスクリーンプリンティングのような通常の湿式工程によって透明電極上にコーティングする。たとえば、前記溶液をITO陽極上に500ないし8,000 rpmで1ないし5分間コーティングし、コーティング層を30ないし100℃で1分ないし1時間乾燥する。【0037】また、本発明の一態様によって、高分子正孔輸送物質が使用され得る。たとえば、下記構造式(IX)のポリアニリンーエメラルジンベース(PANIーEB)を酸でドーピングして製造したドープされたポリアニリンをポリイミドと配合して正孔輸送層を製造できる。

前記式で、nは2以上の整数である。

【0039】クロロホルム、N-メチル-2-ピロリド ン (NMP)、ジメチルアセトアミド (DMAc)、ジ メチルホルムアミド (DMF) 、ジメチルスルホキシド (DMSO)、テトラヒドロフラン(THF)のような 溶媒中で、ポリアニリンーエメラルジンベースをドデシ ルベンゼンスルホン酸(DBSA)、ショウノウスルホ ン酸(CSA) ((+) および(-) 型)、ベンゼンス ルホン酸、pートルエンスルホン酸 (PTSA)、5-グすることができる。酸でドープされたポリアニリンは 一般式(X)の繰り返し単位を有する。

[0040]

【化14】

前記式で、X-は酸の陰イオンである。

ド前駆体に2:98ないし95:5の重量比で分散し、 生成した混合物を0.5ないし10重量%の濃度で溶媒 に溶解する。この場合、Nーメチルー2ーピロリドン (NMP)、ジメチルアセトアミド(DMAc)、ジメ チルスルホキシド (DMSO) のような弱い塩基性溶媒 を用いることが好ましい。

【0042】ドーピングされたポリアニリン/ポリイミ ド前駆体溶液は500ないし8,000rpmで1ない し5分間陽極透明電極上にスピンコーティングする。次 いで、コーティングされた薄膜を30ないし100℃で 30 30分以上乾燥した後、100ないし600℃で熱イミ ド化するか、紫外線を照射してポリイミドに転換させ る。

【0043】ドービングされたポリアニリンを5:95 ないし80:20の重量比でポリエーテルイミド (PE 1) に分散することもできる。適切な重量比のドーピン グされたポリアニリン/ポリエーテルイミド(PEI) の混合物をクロロホルムのような溶媒に0.5ないし1 0重量%の濃度で溶かしてコーティング溶液を製造し、 これをスピンコーティングのような通常の湿式工程によ 40 って500ないし8,000rpmで1ないし5分間陽 極上にコーティングする。次いで、コーティング層を3 0ないし100℃で30分以上乾燥する。

【0044】前記正孔輸送層の厚さは20ないし100 nmの範囲である。

【0045】有機発光層

本発明の有機発光層は、有機発光残基を有する一般式 (1) のポリイミド、または一般式(1) のポリイミド と通常の有機発光物質との混合物からなる。具体的な有 機発光物質は、トリス(8-ヒドロキシキノリノラト)

アルミニウム(Alq3)、4-(ジシアノメチレン)-2-メチル-6-(4-ジメチルアミノスチリル)-4H ーピラン(DCM)、1,4-ジスチリルベンゼン、ア ントラセン、テトラセン、ペントラセン、コロネン、ペ リレン、ピレン、ビス (8-キノリノラト) 亜鉛(I I)、9,10-ジフェニルアントラセン、トリス(4, 4, 4 - 1 - 1 - (2 - 1 - 1) - 1, 3 - 7タンジオノ)-1,10-フェナントロリンユウロピウム (III) (Eu (TTFA) 3Phen)、トリス (2, スルホサリチル酸 (SSA) などのような酸でドーピン 10 4ーペンタジオノ)ー1,10ーフェナントロリンテルビ ウム (III) (Tb (ACAC) 3Phen) およびト リス (4,4,4-トリフルオロー1-(2-チエニル)-1,3-ブタンジオノ)-1,10-フェナンスロリンジ スプロシウム(III)(Dv(TTFA)3Phen) などを含む。

20

【0046】有機発光物質は、一般式 (II) の可溶性ポ リエーテルイミド中に5:95ないし70:30範囲の 重量比で分散され得る。重量比が5:95未満であれば 発光能力が低くなり、70:30を超過すると正孔輸送 【0041】ドーピングされたポリアニリンをポリイミ 20 層の表面均一性が低下する。有機発光物質/PEI混合 物をクロロホルム、ジクロロメタンおよびクロロエタン のような溶媒に0.3ないし10重量%の濃度で分散さ せてコーティング溶液を製造する。

> 【0047】このように製造した有機発光物質/ポリエ ーテルイミドコーティング溶液はスピンコーティングの ような通常の湿式工程を用いて陽極上、または、正孔輸 送層が用いられる場合は正孔輸送層の表面上にコーティ ングする。たとえば、前記溶液を500ないし8,00 Orpmで1ないし5分間コーティングし、生成したコ ーティング層を30ないし100℃で30ないし2時間 乾燥する。

> 【0048】また、有機発光層にポリイミド前駆体が用 いられる場合は、5:95ないし70:30の重量比の 有機発光物質とポリイミド前駆体混合物をNーメチルー 2-ピロリドン(NMP)、ジメチルアセトアミド(D MAc)、ジメチルホルムアミド (DMF) などの溶媒

> 【0049】このように製造した有機発光物質/ポリイ ミド前駆体コーティング溶液はスピンコーティングのよ うな通常の湿式工程を用いて陽極上、または、正孔輸送 層が用いられる場合は正孔輸送層の表面上にコーティン グする。たとえば、前記溶液を500ないし8,000 rpmで3分以上コーティングし、生成したコーティン グ層を40ないし100℃で1時間以上乾燥した後、1 00ないし600℃で1ないし2時間熱アミド化する か、紫外線を照射して有機発光層を製造する。

> 【0050】前記有機発光層の厚さは10ないし200 nmであることが好ましい。有機発光層の厚さを調節す ることによって本発明のターンオン(turn-on) 電圧を調節することができる。

【0051】電子輸送層

本発明の電子輸送層には、電子輸送残基を有する一般式 (I)のポリイミド、または一般式 (I)のポリイミド と通常の電子輸送物質との混合物が使用され得る。電子輸送物質の具体的な例としては、2-(4-ビフェニル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール(ブチルーPBD) およびオキサジアゾール誘導体 (OXD)がある。電子輸送層は、有機発光層上に電子輸送物質を蒸着して形成するか、またはポリイミドマトリックス中に分散された電子輸送物質層を有 10機発光層の製造時と類似な手順に従ってコーティングして製造できる。

【0052】多層構造

前述したように、有機発光物質、正孔輸送物質および/ または電子輸送物質を含む本発明の有機層は単一層また は多層形態であり得る。

【0053】たとえば、ポリエーテルイミド、有機発光物質および正孔輸送物質の配合物を陽極上にコーティングして正孔輸送/有機発光層を製造することによって正孔輸送物質および有機発光物質を一つの有機層に混入し20得る。

【0054】また、有機発光および電子輸送能力を共に有する有機金属化合物、たとえば、トリス (8-ヒドロキシキノリノラト)アルミニウム (Alq3)を有機発光層の製造時と類似な手順に従ってポリイミドマトリックスに分散させて有機発光/電子輸送単一層を形成し得る。

【0055】さらに、有機発光素子の駆動の際に正孔伝達層から正孔が円滑に有機発光層に注入されるように正孔輸送層に一定量の有機発光物質を混合し得る。また、本発明の電気発光素子に電子輸送層が用いられる場合電子輸送層にも有機発光物質を加えて接触性を改善し得る。

【0056】好ましい態様

本発明の好ましい態様は次の通りである。

【0057】前記有機中間層が、有機発光層と、N, N'ージフェニルーN, N'ービス(3ーメチルフェニル)-1, 1'ージフェニルー4, 4'ージアミン、ポリ(Nービニルカルバゾール) およびこれらの混合物からなる群から選ばれた正孔輸送物質ならびに一般式(II)のポリエーテルイミドを10:90ないし90:10範囲の重量比で含有する正孔輸送層とからなる電気発光素子。

【0058】前記有機発光層が、有機発光物質および前記ポリエーテルイミドを5:95ないし70:30範囲の重量比で含有する電気発光素子。

【0059】前記有機中間層が、有機発光層と、前記ポリエーテルイミド、正孔輸送物質および有機発光物質の三つの成分を4:3:3ないし5:4:1範囲の重量比で含有する正孔輸送層とからなる電気発光素子。

【0060】前記有機中間層が、有機発光層と、2:98ないし95:5重量比範囲の酸でドーピングされたポリアニリンおよび前記ポリイミド前駆体の混合物をコーティングし、コーティング層を加熱イミド化して製造さ

【0061】前記有機中間層が、有機発光層と、酸でドーピングされたポリアニリンおよび前記ポリエーテルイミドを5:95ないし80:20範囲の重量比で含有する正孔輸送層とからなる電気発光素子。

れる正孔輸送層とからなる電気発光素子。

【0062】前記有機発光層が、2:98ないし95:5重量比範囲の有機発光物質および前記ポリイミド前駆体の混合物をコーティングし、コーティング層を加熱イミド化して製造される電気発光素子。

【0063】前記有機中間層が、正孔輸送物質および前記ポリエーテルイミドを5:95ないし80:20範囲の重量比で含有する正孔輸送層と、有機発光および電子輸送能力を共に有する有機金属化合物および前記ポリエーテルイミドを5:95ないし70:30範囲の重量比で含有する有機発光層とからなる電気発光素子。

【0064】前記有機中間層が、2:98ないし95:5重量比範囲のドーピングされたポリアニリンおよび前記ポリイミド前駆体の混合物をコーティングし、コーティング層を加熱イミド化して製造された正孔輸送層と、有機発光物質および前記ポリエーテルイミドを5:95ないし70:30範囲の重量比で含有する有機発光層とからなる電気発光素子。

【0065】本発明では、接触抵抗を減らすと同時に金属と有機層との接着を改善するために、陽極上に、または陰極をコーティングする前にポリイミド薄膜をさらにコーティングし得る。また、本発明の素子を適切な樹脂でパッケージングして空気および水分から保護することによって安定性を増加させ得る。

【0066】単一層および多層構造の有機中間層を有する本発明の電気発光素子において、ポリイミドは素子の安定性、電気発光効率および寿命を増加するために一つ以上の有機層に使用され得る。特に、有機中間層がポリイミド/ポリイミドの二層構造の形態である場合には素子の物理的安定性が非常に改善される。また、ポリイミドに分散される有機発光物質の量および印加電圧を調節して発光の波長を調整し得る。

【0067】本発明の有機電気発光素子は湿式工程で製造できるため大きい平板の形で製造することが可能である。また、すべての有機層に一つ以上のポリイミド層が用いられ、柔軟な電極が用いられる場合、曲折した表示素子の製造も可能である。また、本発明は、有機電気発光素子だけでなく、太陽電池(solarcel

l)、FET (field effect transister)、光ダイオードなどに活用され得る。

[0068]

【実施例】以下、本発明を下記実施例によってさらに詳

50

細に説明する。ただし、下記実施例は本発明を例示する のみであり、本発明の範囲を制限しない。

【0069】実施例1

透明ガラス上にITOをコーティングして透明陽極を製 造した。

[0070]N, N' - 57x = N - N, N' - 5x = (3)ーメチルフェニル)-1,1'-ジフェニル-4,4'-ジアミン(N, N'-diphenyl-N, N'-bis(3-me thylphenyl)-4,4'-diamine:以下、 TPDという) および一般式 (II) のポリエーテルイミ ド(PEI)を重量比50:50としてクロロホルムに 0. 5重量%の濃度で溶解した。前記TPD/PEI溶 液を前記透明 I TO陽極にコーティングし、乾燥して6 0 n m厚さの正孔輸送層を製造した。

【0071】前記正孔輸送層上にトリス(8-ヒドロキ シキノリノラト)アルミニウム (Tris (8-hydr oxyquinolinolato) aluminiu m:以下、Alq3という)を真空蒸着して10nm厚 さの有機発光/電子輸送層を製造した。

【0072】次いで、前記有機発光/電子輸送層上にア 20 ルミニウムを $2 \times 10-6$ トール (torr) の圧力 下で真空蒸着して陰極層を製造し、前記陰極上にインジ ウムを蒸着して伝導性の保護層を製造した。

【0073】発光波長は520nm、素子のターンオン (turn-on) 電圧は9V、作動電圧は9-15V であった。

【0074】実施例2

透明ガラス上にITOをコーティングして透明陽極を製 造した。

【0075】N, N'ージフェニルーN, N'ービス (3-x+v)-1, 1'-v+v+4,4'ージアミン (TPD) および一般式 (II) のポリエ ーテルイミド(PEI) を重量比50:50としてクロ ロホルム中で24時間攪拌して1.0重量%の濃度のT PD/PE I 溶液を得た。 前記TPD/PE I 溶液を前 記透明ITO陽極上に4,000гpmで3分間スピン ーコーティングした。コーティングした薄膜を45ない し50℃範囲の温度で乾燥して40nm厚さの正孔輸送 層を製造した。

【0076】トリス(8-ヒドロキシキノリノラト)アル 40 ミニウム(Alq3)および一般式(II)のポリエーテ ルイミド(PEI)を50:50の重量比で混合し、混 合物をクロロホルム中で24時間攪拌して0. 5重量% の濃度のAlq3/PEI溶液を得た。前記溶液を前記 透明ITO陽極上に3,000rpmで3分間スピンー コーティングした。コーティングした薄膜を50℃範囲 の温度で1時間乾燥して25nm厚さの有機発光/電子 輸送層を製造した。

【0077】次いで、前記有機発光/電子輸送層上にア

空蒸着して400nmの陰極層を製造した。

【0078】発光波長は520nm、素子のターンオン 電圧は9V、作動電圧は9-14Vであった。

24

【0079】実施例3

透明ガラス上に1TOをコーティングして透明陽極を製 造した。

【0080】一般式 (II) のポリエーテルイミド (PE I) (分子量45,000)、N,N'ージフェニルー $N, N' - \forall x(3-x + y + y - y - y) - 1, 1' - \forall y$ ェニルー4, 4'ージアミン (TPD) およびトリス (8-ヒドロキシキノリノラト)アルミニウム (Alq 3) を50:40:10の重量比で混合した。生成した 混合物をクロロホルム中で24時間攪拌して0. 5%重 量の濃度のTPD+Ala3/PEI溶液を得た。前記 TPD+Alq3/PEI溶液を前記透明ITO陽極上 に5,000rpmで1分間スピン-コーティングし た。コーティングした薄膜を60℃で1時間乾燥して3 0 nm厚さの正孔輸送層を製造した。

【0081】前記正孔輸送層上にトリス(8-ヒドロキ シキノリノラト)アルミニウム(Ala3)を真空蒸着 して有機発光/電子輸送層を製造した。

【0082】次いで、前記有機発光/電子輸送層上にア ルミニウムを10-6トール(torr)の圧力下で真 空蒸着して400nmの陰極層を製造した。

【0083】発光波長は520nm、素子のターンオン 電圧は9 V、作動電圧は9-12 Vであった。

【0084】実施例4

透明ガラス上にITOをコーティングして透明陽極を製 造した。

【0085】ポリアニリンエメラルジンベース(Pol yaniline emeraldine base:以 下、PANIという)をN-メチル-2-ピロリドン中 に溶けているドデシルベンゼンスルホン酸 (Dodec ylbenzene sulfonic acid:以 下、DBSAという)でドーピングしてドーピングされ たポリアニリン (PANI-DBSA) を得た。ドーピ ングされたポリアニリン (PANI-DBSA) を一般 式(II) のポリエーテルイミド(PEI) と50:50 の重量比で混合し、クロロホルム中で24時間攪拌して 0.5重量%の濃度のPANI-DBSA/PEI溶液 を得た。PANI-DBSA/PEI溶液を前記透明I TO陽極上に5,000rpmで90秒間スピンーコー ティングした。コーティングした薄膜を60℃で1時間 乾燥して50nm厚さの正孔輸送層を製造した。

【0086】5 x 10-6の圧力下で前記正孔輸送層 上にトリス(8ーヒドロキシキノリノラト)アルミニウム (Ala3)を真空蒸着して10nm厚さの有機発光/ 電子輸送層を製造した。

【0087】次いで、前記有機発光/電子輸送層上にア ルミニウムを10-6トール(torr)の圧力下で真 50 ルミニウムを5 x 10-6トール(torr)の圧力

下で真空蒸着して陰極層を製造した。

【0088】発光波長は520nm、素子のターンオン 電圧は6 V、作動電圧は6 - 9 Vであった。

【0089】実施例5

透明ガラス上にITOをコーティングして透明陽極を製 造した。

【0090】ポリアニリンエメラルジンベース(PAN I) をN-メチル-2-ピロリドン中に溶けているドデ シルベンゼンスルホン酸(DBSA)でドーピングして ドーピングされたポリアニリン (PANI-DBSA) を得た。

【0091】4,4ーオキソフェニレンジアミンおよび ピロメリト酸二無水物を25℃で48時間反応させてポ リイミド前駆体、すなわち、一般式(III)のポリアミ ク酸を製造した。

【0092】ドーピングされたポリアニリン(PANI -DBSA) およびポリアミク酸 (Polyamic a c i d : 以下、PAAという) を 2 0 : 8 0 の重量比 で混合し、クロロホルム中で攪拌して1重量%濃度のP ANI-DBSA/PAA溶液を得た。前記PANI-DBSA/PAA溶液を前記透明ITO陽極上に5,0 00rpmで3分間スピンーコーティングした。コーテ ィングした薄膜を200℃で1時間熱イミド化して60 nm厚さの正孔輸送層を製造した。

【0093】前記正孔輸送層上にトリス(8-ヒドロキ シキノリノラト)アルミニウム(Alq3)を5 x 1 0-6の圧力下で0.02nm/秒の速度で蒸着して5 nm厚さの有機発光/電子輸送層を製造した。

【0094】次いで、前記有機発光/電子輸送層上にア 下で真空蒸着して300nmの陰極層を製造した。

【0095】発光波長は520nm、素子のターンオン 電圧は4V、作動電圧は4-8Vであった。

【0096】実施例6

透明ガラス上にITOをコーティングして透明陽極を製 造した。

【0097】N, N'ージフェニルーN, N'ービス (3-メチルフェニル)-1, 1'-ジフェニルー4, 4'ージアミン (TPD) および実施例5で製造した一 般式 (III) のポリアミク酸 (PAA) を30:70の 重量比で混合した。混合物をジメチルホルムアミドに溶 かして1重量%の濃度のTPD/PAA溶液を得た。前 記溶液を前記透明ITO陽極上に3,000rpmで3 分間スピンーコーティングした。コーティングした薄膜 を200℃で1時間加熱アミド化して40nm厚さの正 孔輸送層を製造した。

【0098】ペリレンおよび一般式(II)のポリエーテ ルイミド (PEI) を30:70の重量比で混合し、混 合物をクロロホルム中で24時間攪拌して1重量%の濃 度のペリレン/PEI溶液を得た。前記溶液を前記透明 50

ITO陽極上に3,000rpmで3分間スピンーコー ティングし、コーティングした薄膜を47℃で1時間乾 燥して35nm厚さの有機発光層を製造した。

【0099】次いで、前記有機発光上にアルミニウムを 10-6トール (torr) の圧力下で真空蒸着して3 00nmの陰極層を製造した。

【0100】発光波長は520nm/610nm、素子 のターンオン電圧は9 V、作動電圧は15-19 Vであ

【0101】実施例7

透明ガラス上にITOをコーティングして透明陽極を製 造した。

【0102】1,1,4,4ーテトラフェニルー1,3ーブ タジエン (1,1,4,4-tetraphenyl-1,3-bu tadiene:以下、TBという)および一般式(I I) のポリエーテルイミド (PEI) を50:50の重 量比で混合した。混合物をクロロホルムに2.0重量% の濃度で溶かして2.0重量%のTB/PEI溶液を得 た。前記溶液を前記透明ITO陽極に3,000rpm で3分間スピンーコーティングした。コーティングした 薄膜を50℃で1時間乾燥して100nm厚さの有機発 光層を製造した。

【0103】次いで、有機発光層上にアルミニウムを1 0-6トール (torr) の圧力下で蒸着して陰極層を 製造し、前記陰極上にインジウムを蒸着して伝導保護層 を製造した。

【0104】発光波長は440nm、素子のターンオン 電圧は12V、作動電圧は13Vであった。

【0105】実施例8

ルミニウムを5 x 10-6トール(torr)の圧力 30 透明ガラス上にITOをコーティングして透明陽極を製 造した。

> 【0106】4-(ジシアノメチレン)-2-メチル-6 -(4-ジメチルアミノスチリル)-4H-ピラン(4-(dicyanomethylene)-2-methyl-6-(4-dimethylaminostryl)-4H-py ran:以下、DCMという)および一般式(II)のポ リエーテルイミド (PEI) を50:50の重量比で混 合した。DCM/PEIをクロロホルムに溶解し、溶液 を前記透明ITO陽極に3,000грmで3分間スピ ンーコーティングした。コーティングした薄膜を50℃ で1時間乾燥して有機発光層を製造した。

> 【0107】次いで、前記有機発光層上にアルミニウム を5×10-6トール (torr) の圧力下で蒸着して 300nm厚さの陰極層を製造した。

> 【0108】発光波長は620nm、素子のターンオン 電圧は15V、作動電圧は10-15Vであった。

【0109】実施例9

透明ガラス上にITOをコーティングして透明陽極を製 造した。

【0110】4-(ジシアノメチレン)-2-メチル-6

10

-(4-ジメチルアミノスチリル)-4H-ピラン(DC M) および一般式 (II) のポリエーテルイミド (PE I) を50:50の重量比で混合した。DCM/PEI をクロロホルムに溶解し、溶液を前記透明ITO陽極に 2,000rpmで3分間スピンーコーティングした。 コーティングした薄膜を50℃で1時間乾燥して有機発 光層を製造した。

【0111】次いで、前記有機発光層上にアルミニウム を5x10-6トール (torr) の圧力下で蒸着して 300nm厚さの陰極層を製造した。

【0112】発光波長は620nm、素子のターンオン 電圧は16Vであった。

【0113】実施例10

透明ガラス上にITOをコーティングして透明陽極を製 造した。

【0114】ペリレンおよび一般式(II)のポリエーテ ルイミド (PEI) を40:60の重量比で混合した。 混合物をクロロホルムに溶解し、溶液を前記透明ITO 陽極に3,000rpmで3分間スピンーコーティング した。コーティングした薄膜を47℃で1時間乾燥して 20 60nm厚さの有機発光層を製造した。

【0115】次いで、前記有機発光層上にアルミニウム を 5 x 1 0 - 6 トール (torr) の圧力下で真空蒸着 して400nm厚さの陰極層を製造した。

【0116】発光波長は520/610nm、素子のタ ーンオン電圧は 6 V、作動電圧は 6 - 1 0 V であった。

【0117】実施例11

透明ガラス上にITOをコーティングして透明陽極を製 造した。

【0118】トリス(8-ヒドロキシキノリノラト)アル ミニウム (Alq3) およびポリ (p-フェニレンビフ ェニルテトラカボキサミン酸) (p-phenylen e biphenyl tetracaboxamic a cid:BPDA-PDA PAA)を50:50の重 量比で混合した。生成した混合物をNーメチルー2ーピ ロリドンに溶かした。前記溶液を前記透明ITO陽極上 に2,500rpmで3分間スピンーコーティングし た。コーティングした薄膜を83℃で4時間乾燥して1 20 n m厚さの有機発光/電子輸送層を製造した。

【0119】次いで、前記有機発光/電子輸送層上にア 40 ルミニウムを10-6トール(torr)の圧力下で真 空蒸着して陰極層を製造し、前記陰極層にインジウムを 蒸着して伝導保護層を製造した。

【0120】発光波長は520nm、素子のターンオン 電圧は18V、作動電圧は18-21Vであった。

【0121】実施例12

透明ガラス上にITOをコーティングして透明陽極を製 造した。

【0122】N, N'ージフェニルーN, N'ービス

4' -ジアミン (TPD) および一般式 (II) のポリエ ーテルイミド (PEI) を重量比50:50としてクロ ロホルムに分散して0.5重量%の濃度のTPD/PE I溶液を得た。前記TPD/PEI溶液を前記透明IT O陽極上に5,000rpmで3分間スピンーコーティ ングした。コーティングした薄膜を乾燥して30nm厚 さの正孔輸送層を製造した。

【0123】前記正孔輸送層上にトリス(8-ヒドロキ シキノリノラト)アルミニウム (Ala3) を蒸着して 10 20 n m 厚さの有機発光/電子輸送層を製造した。

【0124】次いで、前記有機発光/電子輸送層上にア ルミニウムを5 x 10-6トール(torr)の圧力 下で真空蒸着して300mmの陰極層を製造した。

【0125】発光波長は520nmであった。

【0126】図2は、本発明の実施例12による有機電 気発光素子の印加電圧に対する電流密度(A/m2)

(黒丸) および輝度 (cd/m2) (白丸) の変化を示 す。素子のターンオン電圧は5.5であり、作動電圧は 6.5-9 V \overline{c} 5 -9 \overline{c}

【0127】図3は、本発明の実施例12による有機電 気発光素子の電流密度 (A/m2) に対する発光効率の 変化を示す。前記結果から、6.5 Vの作動電圧で素子 の発光効率が14 1m/Wであることが分かる。した がって、本発明の電気発光素子の発光効率は非常に高

【0128】図4は、本発明の実施例12による有機電 気発光素子の発光強度の経時変化を示す。図4から、発 光強度が半減するに所要される時間は2,000時間と 計算される。したがって、本発明の素子は非常に優れた 安定性を有し、保護パッケージングをする場合には寿命 がさらに大幅に伸びるものと予測される。

[0129]

【発明の効果】前記結果から分かるように、本発明の電 気発光素子は、素子構造にポリイミドを導入することに よって高い発光安定性、改善された発光効率および延長 された寿命を有する。したがって、本発明による有機層 は、有機電気発光素子の外にも有機半導体素子である態 様電池、FET素子、有機薄膜センサーなどに応用でき

【図面の簡単な説明】

【図1】図1は、本発明の一態様による電気発光素子の 概略的な構造図を示す。

【図2】図2は、本発明の実施例12による有機電気発 光素子の印加電圧に対する電流密度(A/m2)(黒 丸) および輝度 (c d / m 2) (白丸) の変化を示す。

【図3】図3は、本発明の実施例12による有機電気発 光素子の電流密度 (A/m2) に対する発光効率の変化 を示す。

【図4】図4は、本発明の実施例12による有機電気発 50 光素子の発光強度の経時変化を示す。

6:電子伝達層 7:ポリイミド緩衝層

【符号の説明】

4:正孔輸送層

1:透明基板 2:透明電極

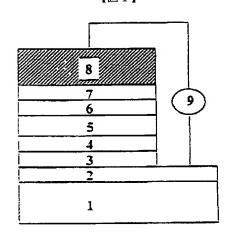
3:ポリイミド緩衝層

* 5:発光層

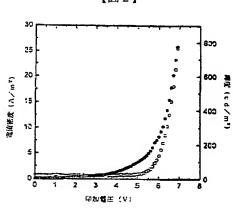
9:電源

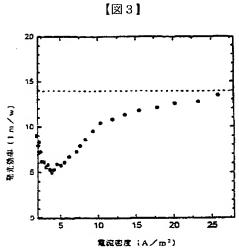
8:金属電極

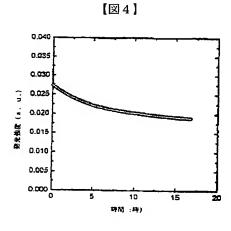
【図1】



【図2】







フロントページの続き

| (51) Int. Cl. 7 | | 識別記号 | FΙ | | テーマコード(参考) |
|-----------------|-------|-------|---------|-------|------------|
| C 0 8 L | 79/08 | | C 0 8 L | 79/08 | Α |
| | | | | | Z |
| C 0 9 K | 11/06 | 6 1 0 | C 0 9 K | 11/06 | 6 1 0 |
| | | 6 1 5 | | | 6 1 5 |
| | | 660 | | | 6 6 0 |
| | | 680 | | | 680 |
| | | 690 | | | 6 9 0 |
| H 0 5 B | 33/10 | | H 0 5 B | 33/10 | |
| | 33/22 | | | 33/22 | D |
| | | | | | |

(31)優先権主張番号 1997-52100

(32) 優先日 平成 9 年10月10日 (1997. 10. 10)

(33)優先権主張国 韓国(KR)

(31)優先権主張番号 1997-52103

(32)優先日 平成9年10月10日(1997.10.10)

(33)優先権主張国 韓国(KR)

(31)優先権主張番号 1997-74294

(32)優先日 平成 9年12月26日 (1997. 12. 26)

(33)優先権主張国 韓国(KR)

(31)優先権主張番号 1997-74295

(32)優先日 平成 9年12月26日 (1997. 12. 26)

(33)優先権主張国 韓国(KR)

(31)優先権主張番号 1997-74296

(32) 優先日 平成 9 年12月26日 (1997. 12. 26)

(33)優先権主張国 韓国(KR)

(31)優先権主張番号 1997-74299

(32)優先日 平成9年12月26日(1997.12.26)

(33)優先権主張国 韓国 (KR)

(31)優先権主張番号 1997-74300

(32)優先日 平成9年12月26日(1997.12.26)

(33)優先権主張国 韓国 (KR)

(72)発明者 李 宰▲ぎょうん▼

大韓民国、京畿道463-050城南市盆唐区書 ▲ひゅん▼洞308番地大宇アパート610棟 203号